

LAMINATE

Patent Number: JP3112646
Publication date: 1991-05-14
Inventor(s): CHIHARA MICHIIHIRO; others: 03
Applicant(s): JAPAN SYNTHETIC RUBBER CO LTD
Requested Patent: ☐ JP3112646
Application Number: JP19890251074 19890927
Priority Number(s):
IPC Classification: B32B15/08
EC Classification:
Equivalents:

Abstract

PURPOSE: To obtain a laminate having anti-moisture absorption and less warpage, excellent heat resistivity and configuration stability as well as adhesiveness with metals by laminating a metal layer on a synthetic resin layer consisting of the hydrogenated resin of ring-opening polymer which is obtained such that monomer consisting of a specific norbornene derivative or the monomer is subjected to ring-opening polymerization, or a synthetic resin layer consisting of the resin and a specific quantity of rubber polymer. **CONSTITUTION:** This laminate is made such that a metallic foil is laminated on a synthetic resin layer consisting of the hydrogenated resin of ring-opening polymer which is obtained in that a monomer consisting of at least a kind of a norbornene derivative as shown in a formula I or monomer, or a monomer capable of being copolymerized with these monomers is subjected to ring-opening polymerization, or a synthetic resin layer which is obtained in molding with a composition consisting of 99 - 50 wt.% of resin and 1 - 50 wt.% of rubber polymer. This laminate is excellent in a light weight property, heat insulation, damping property, and workability, moreover, suitable for synthetic resin mirrors and reflection boards, besides, has low water absorption and is excellent in adhesiveness with metallic layers and configuration stability, furthermore, has small distortion.

Data supplied from the esp@cenet database - I2

⑨ 日本国特許庁(JP)

⑩ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報(A)

平3-112646

⑪ Int. Cl.⁵

識別記号

庁内整理番号

⑬ 公開 平成3年(1991)5月14日

B 32 B 15/08

Q

7148-4F

審査請求 未請求 請求項の数 1 (全8頁)

⑭ 発明の名称 積層体

⑮ 特 願 平1-251074

⑯ 出 願 平1(1989)9月27日

⑰ 発 明 者 千 原 道 弘 東京都中央区築地2丁目11番24号 日本合成ゴム株式会社
内
⑰ 発 明 者 小 宮 全 東京都中央区築地2丁目11番24号 日本合成ゴム株式会社
内
⑰ 発 明 者 熊 本 光 芳 東京都中央区築地2丁目11番24号 日本合成ゴム株式会社
内
⑰ 発 明 者 飯 尾 章 東京都中央区築地2丁目11番24号 日本合成ゴム株式会社
内
⑰ 出 願 人 日本合成ゴム株式会社 東京都中央区築地2丁目11番24号

明 細 書

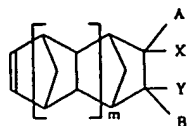
1. 発 明 の 名 称

積 層 体

2. 特許請求の範囲

(1) 下記一般式(I)で表わされる少なくとも1種のノルボルネン誘導体よりなる単量体または該単量体、およびこれらと共重合可能な単量体を開環重合させて得られる開環重合体の水素添加樹脂からなる合成樹脂層、または該樹脂99～50重量%と1～50重量%のゴム質重合体からなる組成物を成形して得られる合成樹脂層に、金属層を積層したことを特徴とする積層体。

一般式(I)



[式中、AおよびBは水素原子または炭素数1～10の炭化水素基であり、XおよびYは水

素原子、炭素数1～10の炭化水素基、 $-(CH_2)_nCOOR^1$ 、 $-(CH_2)_nOCOR^2$ 、 $-(CH_2)_nOR^3$ 、 $-(CH_2)_nCN$ 、またはXとYから構成された

$-\overset{\overset{O}{\parallel}}{C}-O$ もしくは $-\overset{\overset{O}{\parallel}}{C}-NR^4$ を示し、

R^1 、 R^2 、 R^3 および R^4 は炭素数1～20の炭化水素基、nは0～10の整数、mは0または1を示すものである。]

3. 発明の詳細な説明

[産業上の利用分野]

本発明は、低吸湿性で耐熱性、金属層または金属膜の接着性、および形状安定性に優れた歪の少ない合成樹脂と金属との積層体に関する。

[従来の技術]

従来、合成樹脂に金属層を積層させた積層体は知られており、例えばメタクリル樹脂にアルミニウムなど真空コーティング膜を形成させた合成樹脂製ミラーは、軽量であること、破損しにくいこと、加工が簡単なことなどから広く利用されてい

る。

[発明が解決しようとする問題点]

ところが、例えばミラーの基盤材料としてメタクリル樹脂を使った場合、使用中に空気中の水分を吸水し、ソリが発生して形状安定性が十分でないという欠点があり、そのうえ耐熱性が高々100℃であり、使用範囲が限定されていた。また、長時間の使用に際しては、アルミニウムの蒸着反射膜が剥離しやすいという問題があった。また、吸湿性によるソリを少なくした合成樹脂ミラーとして、特開昭64-61704、特開昭64-62601が提案されているが、これらの提案のミラーは、未だ耐熱性が不十分である。

[問題点を解決するための手段]

そこで本発明者らは、上述したごとき従来技術を克服して、耐吸湿性でソリが少なく、耐熱性と形状安定性、金属との接着性に優れた合成樹脂製ミラーなどに有用な、合成樹脂と金属との積層体を提供することを目的とし、鋭意検討した結果、本発明を完成した。

$\begin{array}{c} -CO \\ -CO \end{array} > O$ もしくは $\begin{array}{c} -CO \\ -CO \end{array} > NR^4$ を示し、

R^1, R^2, R^3 および R^4 は炭素数1~20の炭化水素基、 n は0~10の整数、 m は0または1を示すものである。]

本技術に用いる一般式(I)のノルボルネン誘導体は単独で用いられてもよいし、2種以上の化合物を組み合わせて使用してもよい。

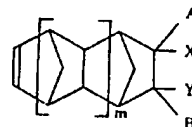
また、樹脂の耐熱性を向上させるために、テトラシクロ[4, 4, 0, 1^{2,5}, 1^{7,10}]-3-ードデセン誘導体を主として用いるのが好ましい。一方で、樹脂の成形性を向上させるために、上記のテトラシクロ[4, 4, 0, 1^{2,5}, 1^{7,10}]-3-ードデセン誘導体に加えて、ビシクロ[2, 2, 1]ヘプト-2-エン誘導体を組み合わせて用いるのが好ましい。

また、上記のノルボルネン誘導体と共重合可能な他の不飽和環状化合物を使用して、共重合体とすることもできる。

これらのノルボルネン誘導体あるいはこれと共

すなわち本発明は、下記一般式(I)で表わされる少なくとも1種のノルボルネン誘導体よりなる単量体または該単量体、およびこれらと共重合可能な単量体を開環重合させて得られる開環重合体の水素添加樹脂からなる合成樹脂層、または該樹脂99~50重量%と1~50重量%のゴム質重合体からなる組成物を成形して得られる合成樹脂層に、金属層を積層したことを特徴とする積層体を提供するものである。

一般式(I)



[式中、AおよびBは水素原子または炭素数1~10の炭化水素基であり、XおよびYは水素原子、炭素数1~10の炭化水素基、 $-(CH_2)_nCOOR^1$ 、 $-(CH_2)_nOCOR^2$ 、 $-(CH_2)_nOR^3$ 、 $-(CH_2)_nCN$ 、またはXとYから構成された

重合可能な不飽和環状化合物の混合物は、(a)例えば、W、Mo、ReあるいはTaの化合物から選ばれた少なくとも1種と、(b)デミングの周期律表Ia、IIa、IIb、IIIa、IVaあるいはIVb族元素の有機金属化合物、ならびに水素化合物から選ばれた少なくとも1種の組み合わせを含む触媒により重合される。

(a)成分のW、Mo、ReあるいはTaの化合物は、ハロゲン化物、オキシハロゲン化物、アルコキシハロゲン化物、アルコキシド、カルボン酸塩、(オキシ)アセチルアセトナート、カルボニル錯体、アセトニトリル錯体、ヒドリド錯体、およびその誘導体あるいはこれらの組み合わせであるが、WおよびMoの化合物、特にこれらのハロゲン化物、オキシハロゲン化物およびアルコキシハロゲン化物が重合活性、実用性の点から好ましい。また、反応によって上記の化合物を生成する2種以上の化合物の混合物も含まれる。また、これらの化合物は適当な錯化剤、例えば $P(C_6H_5)_3$ 、 C_6H_5N などによって錯化されてい

てもよい。

(b) 成分の周期律表のⅠa、Ⅱa、Ⅱb、Ⅲa、ⅣaあるいはⅣb族元素の化合物として適当なものは、有機金属化合物ならびに水素化物から選ばれる少なくとも1種の組み合わせである。また、反応によってこれらの化合物を生成する2種以上の化合物の混合物を用いることもできる。

(a) 成分と(b)成分の量的関係は、金属原子比で(a):(b)が1:1~1:40、好ましくは1:2~1:20の範囲で用いられる。

上記の(a)、(b)二成分から調製された触媒は、本発明の重合反応に対して高い活性を示すが、さらに次に挙げるような(c)成分(活性化剤)を添加して、より高活性の触媒を得ることができる。

(c) 成分としては各種の化合物が使用できるが、特に良好な結果が得られる化合物には次のものが含まれる。①単体ホウ素、 BP_3 、 BCl_3 、 $\text{B}(\text{O}-\text{n}-\text{C}_4\text{H}_9)_3$ 、 $(\text{C}_2\text{H}_5\text{O})_2\text{BP}$ 、 B_2O_3 、 H_3BO_3 などのホウ素の非有機

飽和炭化水素系溶媒としては、ペンタン、ヘキサン、ヘプタン、シクロペンタン、シクロヘキサン、デカリンなどが使用できる。

芳香族系溶媒としては、ベンゼン、トルエン、キシレン、エチルベンゼンなどが挙げられる。

ハロゲン化溶媒としては、塩化メチレン、クロロホルム、1,2-ジクロロエタン、1,1,2-トリクロロエタン、1,1,2,2-テトラクロロエタン、クロルベンゼンなどが挙げられる。

エーテル系溶媒としては、ジエチルエーテル、1,2-ジメトキシエタン、1,2-ジエトキシエタン、ジエチレングリコールジメチルエーテル、ジエチレングリコールジエチルエーテル、1,4-ブタンジオールジメチルエーテル、1,4-ブタンジオールジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、テトラヒドロピラン、1,4-ジオキサン、アニソールなどが挙げられる。

エステル系溶媒としては、酢酸メチル、酢酸エチル、酢酸プロピル、酢酸ブチルなどが用いられる。

金属化合物、 $\text{Si}(\text{OC}_2\text{H}_5)_4$ などのケイ素の非有機金属化合物、②アルコール類、③水、④酸素、⑤アルデヒド、エステルおよびケトンなどのカルボニル化合物およびその重合物、⑥エチレンオキシド、エピクロルヒドリン、オキセタンなどの環状エーテル類、⑦アミド類、アミン類およびアゾ化合物、⑧N-ニトロソ化合物、⑨S-C1、N-C1基を含む化合物などが含まれる。

また、(a)成分と(c)成分の量的関係は、添加する(c)成分の種類によって極めて多様に変化するため一律に規定できないが、多くの場合に(c)/(a)(モル比)が0.005~1.0、好ましくは0.05~2.0の範囲で用いられる。

メタセシス開環重合で用いられる溶媒は、一般式(I)で表わされる単量体および共重合可能な不飽和環状化合物を溶解するものでなければならない。もちろん、溶媒はメタセシス重合を阻害するものであってはならない。このような目的に適した溶媒としては次のような化合物が挙げられる。

溶媒としては、上に挙げた溶媒の混合系として使用することもできる。

上に挙げた溶媒のうち、本発明に作用する樹脂を製造するのに特に好ましい溶媒は、シクロヘキサン、ベンゼン、トルエン、キシレン、塩化メチレン、1,2-ジクロロエタン、1,2-ジメトキシエタン、酢酸ブチルおよびこれらの混合物が挙げられる。

グラフト重合体は適当な分子調節剤を用いて、望まれる分子量の重合体を合成することができる。

分子量調節剤としては、エチレン、プロペン、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、1-ヘプテンが好適に用いられる。

本発明に使用する樹脂の分子量は、クロロホルム中30℃で測定される溶液粘度が η_{inh} で0.3~2.0の範囲の物が好ましいが、成形性と強度の関係から、 η_{inh} で0.4~1.5の範囲の物がより好ましい。

このようにして得られる合成樹脂は、適当な水素添加触媒によって重合体中の炭素-炭素不飽和

結合を水添される。

水素添加の触媒としては、一般に用いられている触媒をそのまま適用することができる。

例えば、不均一系触媒としては、パラジウム、白金、ニッケル、ロジウム、ルテニウムなどの貴金属触媒を、カーボン、シリカ、アルミナ、チタニアなどの担体に担持させた固体触媒などが挙げられる。触媒の形態は粉末でも粒状でもよい。また、反応は固定床でも懸濁床でもよい。

また、均一系触媒としては、ナフテン酸ニッケル／トリエチルアルミニウム、ニッケルアセチルアセトナート／トリエチルアルミニウム、オクテン酸コバルト／n-ブチルリチウム、チタノセンジクロリド／ジエチルアルミニウムモノクロリド、酢酸ロジウム、クロロトリス(トリフェニルフォスフィン)ロジウムなどのロジウム触媒などを挙げることができる。

水素添加反応は、常圧～300気圧、好ましくは3～200気圧の水素ガス雰囲気下において、0～200℃、好ましくは20～180℃で行な

うことができる。

水素添加反応に用いる溶媒は、重合に用いた溶媒のうち炭素-炭素不飽和結合を持たない溶媒はそのまま使用できる。ただし、水素添加触媒によってはハロゲン元素が阻害剤として働くものがあるため、その場合にはハロゲン含有溶媒の使用は避けなければならない。

水添反応溶媒として好ましい溶媒は、エーテル系溶媒、すなわちテトラヒドロフラン、エチレングリコールジメチルエーテルなど、炭化水素系溶媒、すなわちヘキサン、シクロヘキサン、デカリンなど、およびこれらの混合溶媒などが挙げられる。

このようにして水素添加することにより、優れた熱安定性を有するものとなり、成形加工時や製品としての使用時の加熱によって、その特性が劣化することがきわめて低く抑制される。

水素添加率は、通常50%以上、好ましくは70%以上、さらに好ましくは80%以上である。水素添加率が50%未満の場合は、熱安定性の改

良効果不十分となる。

本発明に使用する樹脂は、公知の酸化防止剤あるいは紫外線吸収剤などを添加して、さらに安定化することができる。また加工性を向上するために、滑剤などの従来の樹脂加工において用いられている添加剤を添加することもできる。

本発明で使用する樹脂は、ゴム質重合体と混合することによって、耐衝撃性を有する透明性樹脂とすることもできる。

ゴム質重合体としては、透明性を損なわないために、本樹脂の屈折率とゴム質重合体の屈折率の差が0.05以下、好ましくは0.03以下であるものを用いる。

具体的には、スチレン-ブタジエン共重合体、ポリブタジエン、エチレン-プロピレン-ジエン共重合体、ブタジエン-アクリロニトリル共重合体、スチレン-イソプレン共重合体、またはそれらの部分または完全水添物、エチレン-α-オレフィン共重合体などが挙げられる。

これらのうち、スチレン-ブタジエン、スチレ

ン-イソプレンの共重合体の部分または完全水添物が、熱安定性の点および屈折率を調整しやすい点から好ましく、さらには透明性が高い点から、スチレン-ブタジエン、スチレン-イソプレンの各ブロック共重合体の部分または完全水添物により好ましい。

また混合量としては、1～50重量%、好ましくは5～20重量%である。混合は、溶液ブレンドもしくは押出機などによる熔融ブレンドで行なうことができる。

合成樹脂層への金属層の積層方法としては、あらかじめ金属のフィルムなどを製造し、これを合成樹脂に接着剤などで積層する方法や、金属のフィルムと合成樹脂を加熱加圧成形によって積層する方法、合成樹脂層へ金属を真空コーティングなどによりコーティングする方法などにより積層することができる。

金属としては、アルミニウム、銅、鉄、亜鉛、ニッケルなど種々の金属が挙げられる。

合成樹脂層への真空コーティングによる金属層

の形成は、アルミニウム、銅などの金属を公知の薄膜形成方法である真空蒸着、スパッタリング、イオンプレーティングなどで行なうことができる。

本発明の合成樹脂を用いた積層体は、上記の構成で十分に目的を達することができるが、さらに積層体の合成樹脂表面の耐摩耗性および耐吸湿性を向上させるために、金属層を積層させてない合成樹脂板の面に架橋性単量体を塗布し、硬化させて、架橋硬化被膜を形成させることもできる。また、真空コーティング金属層の上に、さらに透明な保護塗膜を形成させることもでき、このような積層体とすることにより、例えば両面ミラーとすることもできる。

保護塗膜としては、例えばエポキシ-イソシアネート樹脂系、メラミン-アクリル樹脂系、シリコン-アクリル樹脂系、ポリエステル樹脂系、ニトロセルロース樹脂系などが適している。

保護塗膜の形成方法は、ロールコーティング法、グラビアコーティング法、リバースコーティング法、スプレーコーティング法などの通常のコーテ

ィング法によって行なわれる。

[実施例]

以下、実施例により本発明をさらに詳しく説明する。

なお、本発明にかかわる合成樹脂の製造に用いた単量体は、8-メチル-8-メトキシカルボニルテトラシクロ〔4, 4, 0, 1^{2.5}, 1^{7.10}〕-3-ドデセン（以下DNMと略す）、8-メチル-8-エトキシカルボニルテトラシクロ〔4, 4, 0, 1^{2.5}, 1^{7.10}〕-3-ドデセン（以下DNEと略す）、ジシクロペンタジエン（DCP）、5-メチル-5-メトキシカルボニルピシクロ〔2, 2, 1〕ヘプト-2-エン（以下NMと略す）、3-ニチリデン-テトラシクロ〔4, 4, 0, 1^{2.5}, 1^{7.10}〕-8-ドデセン（以下E-DMONと略す）である。また、実施例中〔%〕とあるのは〔重量%〕を示す。

実施例中の物性の評価は下記の方法で行なった。

1) 吸水率

試験片を23℃の蒸留水にひたし、24時間放

置後、吸水率を求めた。

2) 光学特性

試験片の全光線透過率、曇価を測定した。

3) 耐熱性

樹脂のT_gを測定した。

4) 耐水性

試験片を沸水中に4時間浸漬し、外観変化を観察した。

5) アルミニウム蒸着膜接着性

アルミニウムを真空蒸着した試験片を80℃、相対湿度50%の雰囲気中で24時間放置後、蒸着膜表面を観察した。

6) 引きはがしテスト

積層板を室温下で手で引きはがし、その強さを判定した。

評価 内 容

○ ; 引きはがせない。

△ ; 引きはがしに力を要する。

× ; 容易に引きはがせる。

実施例1~4

表-1に示した割合で各単量体を50g反応器に加えた。溶媒として、シクロヘキサンとジメトキシエタンの80/20（重量比）の混合溶媒を単量体の重量に対して3~5倍量加えて溶解した。分子重調節剤として、1-ヘキセンを単量体のモル数に対して10~30mol%加えた。溶液を80℃に加熱して、ジエチルアルミニウムクロリド、6塩化タングステンをそれぞれ単量体に対して1/250mol、1/5000mol加えて重合を3時間行なった。重合後、パラジウム/アルミナ水添触媒を加えて水素圧40kg/cm²、温度160℃で水素添加を行なった。水添触媒を通過後、溶媒を除いて固化させた。得られた粉末を乾燥後40φベント付押出機でペレット化し、射出成形により55×80×2.4mmの樹脂板を得た。これら樹脂板の物性の評価結果を表-1に併記する。

なお、金属接着性に関しては、これら樹脂板の片面にアルミニウム（1×10⁻⁴Torrの減圧下で）を真空蒸着し（厚さ50nmの均質なアルミ

ニウム反射膜を形成させた)、合成樹脂積層体を作製して評価を行なった。

実施例 5

表-1に示した割合でDNMの重合体とゴム重合体A^{*}を40φベント付押出機により混合、ペレット化し、実施例1~4と同様な装置により、同じ寸法の樹脂板を得た。なお、ゴム重合体A^{*}は次のようなものである。

第1ブロック(A)がスチレン、第2ブロック(B)がブタジエン(1,2-ビニル結合含量が52%)、第3ブロック(C)がブタジエン(1,2-ビニル結合含量が15%)の3つのブロックで構成されるブロック共重合体の水添品(組成比A:B:C=30:62:8、水添率97%、数平均分子量 13.4×10^4)。

樹脂板の物性の評価結果を表-1に併記する。

また、金属接着性に関しては実施例1~4と同様な方法でアルミニウムを真空蒸着し、評価を行なった。

比較例 1

市販のPMMAであるパラベット:GF-1000(協和ガス化学工業)を、実施例1~5と同様な方法により、同じ寸法の樹脂板を得た。樹脂板の物性の評価結果を表-1に記する。

また金属接着性に関しては、実施例1~5と同様な方法でアルミニウムを真空蒸着し、評価を行なった。

比較例 2

E-DMONを実施例1~4と同じ方法で製造し、評価した。評価結果を表-1に記する。

以下 余 白

表 - 1

		実 施 例					比 較 例	
		1	2	3	4	5	1	2
仕 込 み 単 量 体 組 成 (%)	DNM	100		80	80	100		
	DNE		100					
	DCP				20			
	NM			20				
	MMA						100	
	E-DMON							100
ゴム質重合体A [*] (%)						20		
水 素 添 加 率 (%)		100	100	100	100	100	-	100
吸 水 率 (%)		0.19	0.17		0.10	0.19	0.31	
全 光 線 透 過 率 (%)		90.0	91.4	90.2	89.8		94.1	90
硬 度 (%)		2.2	2.1	2.1	2.2	2.2	1.6	2.0
耐 熱 性 T _g (℃)		170	140	141	131		100	160
金属接着性(表面変化)		○	○	○	○	○	×	×
耐 水 性 (外観変化)		○	○	○	○	○	×	○

実施例6～9、比較例3

表-2に示した割合で各単量体を用い、実施例1と同様にしてペレットを製造した。

このペレットを40φ押出機からなるシート化装置を用いて、厚さ1mm、幅40mmのシートを製作した。次にこのシートを40×100×0.3mmの表-2に示した各金属板上におき、260～280℃で10分間加圧成形して積層板を製造した。

この積層板について耐水性、引きはがしテストをした結果を表-2に示した。

以下余白

表 - 2

		実 施 例				比 較 例
		6	7	8	9	3
仕 込 単 量 体 組 成 (%)	D N M	100	100	80	80	
	D C P			20		
	N M				20	
	E - D M O N					100
水 素 添 加 率 (%)		100	99	100	100	100
金 属 板 (種類)		アルミニウム	鉄	銅	亜鉛	鉄
プ レ ス 温 度 (℃)		280	280	260	260	280
耐 水 性		○	○	○	○	○
引きはがしテスト		○	○	○	○	×

【発明の効果】

本発明の積層体は軽量性、断熱性、制振性、加工性が優れ、実用上極めて有用である。

具体的用途としては、ミラーなどの日用品、ドア、屋根、間仕切り板、天井、日隠し板、浴槽周りなどの内・外装建築材料、机、椅子、整理箱、棚などの家具、輸送用大型および小型コンテナ、トランクなどの容器、車両内外装品、車両用ミラー、冷凍車ボディー、看板、室内外装飾などのディスプレイ、道路反射板、トンネル内反射板、歩道橋の側板などの土木用品、モーター、OA機器、電気製品などのカバーやケースやキャビネットなどに利用できる。

中でも合成樹脂製ミラー、反射板として有用であり、従来のものに比べて吸水性が低く、耐熱性、金属層との接着性、形状安定性に優れ、歪も小さく、実用上極めて有用である。

特許出願人 日本合成ゴム株式会社

手 続 補 正 書 (自 発)

平成元年12月28日



特許庁長官 吉田 文俊 殿

1. 事件の表示

平成1年特許願第251074号

2. 発明の名称

積 層 体

3. 補正をする者

事件との関係 特許出願人

住所 東京都中央区築地二丁目11番24号

名称 (417)日本合成ゴム株式会社

取締役社長 朝倉 龍夫

連絡先 日本合成ゴム株式会社 特許部

電話 (03)5565-6598(直通)



4. 補正の対象

明細書の「発明の詳細な説明」の図

5. 補正内容

別紙のとおり



(別紙)

(1)明細書第6頁第4行「I a、II a、II b、III a」とあるを「I a、I b、II a、II b、III a、III b」に訂正する。

(2)同第7頁第2～3行「I a、II a、II b、III a」とあるを「I a、I b、II a、II b、III a、III b」に訂正する。

(3)同第10頁第9行「グラフト重合体は適当な分子調節剤」とあるを「本発明では適当な分子重調節剤に訂正する。

(4)同第11頁第5行「ニッケル」を削除する。

(5)同第11頁第12～13行「オクテン酸コバルト」を「オクタン酸コバルト」に訂正する。

(6)同第13頁第8行「透明性樹脂」を「樹脂」に訂正する。

(7)同第13頁第10～13行「ゴム質重合体・・を用いる。」とあるを次のとおりとする。

「特にゴム質重合体として、開孔重合体水添物の屈折率との差が0.05以下、好ましくは0.03以下のものを用いた場合は、透明性樹脂とすることもできる。」

(8)同第13頁第14行「具体的には」とあるを「この場合、ゴム質重合体の具体例としては」に訂正する。

(9)同第15頁第5行「目的を達する」とあるを「使用する」に訂正する。

(10)同第15頁第9～10行「また、真空コーティング」とあるを「例えば、この様な積層体をミラーとして使用する場合、」に訂正する。

(11)同第16頁下から第7行「3-ニチリデン」とあるを「3-エチリデン」に訂正する。

(12)同第22頁下から第1行「をした結果」とあるを「の結果」に訂正する。